

DOCKET NO.: 272253US0PCT

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

IN RE APPLICATION OF: Hideyuki SUGAMOTO, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP03/14255

INTERNATIONAL FILING DATE: November 10, 2003

FOR: ACRYLIC RESIN, RESIN PLATE, TRANSPARENT ELECTRODE PLATE FOR TOUCH PANEL AND TOUCH PANEL, AND METHOD OF PRODUCING THE SAME

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119  
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Commissioner for Patents  
Alexandria, Virginia 22313

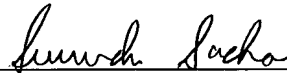
Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<b><u>COUNTRY</u></b>	<b><u>APPLICATION NO</u></b>	<b><u>DAY/MONTH/YEAR</u></b>
Japan	2002-326804	11 November 2002
Japan	2003-287820	06 August 2003
Japan	2003-291216	11 August 2003

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP03/14255. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,  
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon  
Attorney of Record  
Registration No. 24,618  
Surinder Sachar  
Registration No. 34,423

Customer Number

**22850**

(703) 413-3000  
Fax No. (703) 413-2220  
(OSMMN 08/03)

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

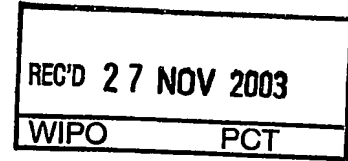
10.11.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

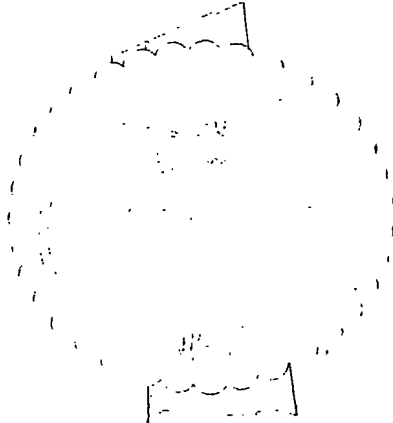
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2002年11月11日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2002-326804  
[ST. 10/C]: [JP2002-326804]



出 願 人  
Applicant(s): 三菱レイヨン株式会社

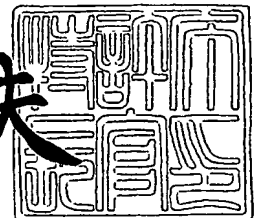


**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年10月31日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 P021507  
【提出日】 平成14年11月11日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 C08F 2/00  
【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 20番1号 三菱レイヨン株式会社  
大竹事業所内

【氏名】 菅本 秀征

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 20番1号 三菱レイヨン株式会社  
大竹事業所内

【氏名】 川合 治

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市御幸町 20番1号 三菱レイヨン株式会社  
大竹事業所内

【氏名】 畠山 宏毅

【特許出願人】

【識別番号】 000006035

【氏名又は名称】 三菱レイヨン株式会社

【代理人】

【識別番号】 100088328

【弁理士】

【氏名又は名称】 金田 暢之

【電話番号】 03-3585-1882

【選任した代理人】

【識別番号】 100106297

【弁理士】

【氏名又は名称】 伊藤 克博

【選任した代理人】

【識別番号】 100106138

【弁理士】

【氏名又は名称】 石橋 政幸

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 089681

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 アクリル系樹脂板の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体 30～65 質量%と、2 個以上の（メタ）アクリロイル基を有する多官能（メタ）アクリレート 35～70 質量%とからなる混合物 100 質量部当たり、

10 時間半減期温度が 80℃以上の重合開始剤 0.001～1 質量部と、

シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体からなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物 0.015～0.2 質量部と

を含有させて重合性混合物とし、該重合性混合物を重合硬化する工程を有するアクリル系樹脂板の製造方法。

【請求項 2】 炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体 70～99 質量%と、炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体単位からなる（共）重合体 1～30 質量%とからなるシラップ 30～65 質量部、および、2 個以上の（メタ）アクリロイル基を有する多官能（メタ）アクリレート 35～70 質量部からなる混合物 100 質量部当たり、

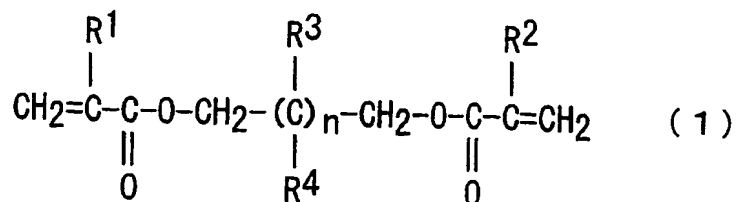
10 時間半減期温度が 80℃以上の重合開始剤 0.001～1 質量部と、

シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体からなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物 0.015～0.2 質量部と

を含有させて重合性混合物とし、該重合性混合物を重合硬化する工程を有するアクリル系樹脂板の製造方法。

【請求項 3】 2 個以上の（メタ）アクリロイル基を有する多官能（メタ）アクリレートが、下記一般式（1）

## 【化1】



(式中、 $\text{R}^1$ および $\text{R}^2$ はHまたは $\text{CH}_3$ を示し、 $\text{R}^3$ および $\text{R}^4$ はHまたは炭素数3以下の炭化水素基を示し、 $n$ は0～4の整数を示す。)

で示される化合物である請求項1または2記載のアクリル系樹脂板の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、耐熱性に優れたアクリル系樹脂板の製造方法に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

アクリル系樹脂板は、その優れた光学特性より、レンズ、自動車部品、照明部品、各種電子ディスプレイ等に使用されているが、高温で加熱処理加工が行われる場合には耐熱性が足りないという欠点がある。

## 【0003】

アクリル系樹脂板の耐熱性を改良する技術として、メタクリル酸メチルの重合時に多官能モノマーを添加することにより、架橋構造を導入する方法がある。例えば、主に耐熱性と耐衝撃性を改良する目的で、メタクリル酸メチル単独重合体とメタクリル酸メチルとからなる組成物に、アルキレングリコールの多官能（メタ）アクリレートを追加して鋳込重合する方法が提案されている（例えば、特許文献1参照）。しかし、この方法では、通常は十分な耐熱性を得ることができない。この方法で十分な耐熱性を得るためには、多官能（メタ）アクリレートを大量に追加する必要があり、その際は得られる樹脂成形品の外観が悪化するという問題がある。

## 【0004】

また、耐熱性や外観を改良する目的で、メタクリル酸メチルと多官能（メタ）アクリレートに、シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体のうちの少なくとも一種を添加して鑄込重合する方法が提案されている（例えば、特許文献2参照）。しかし、この方法では、通常は十分な耐熱性を得ることができない。すなわち、シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体のうちの少なくとも一種を添加すると、耐熱性が低下し、さらに製造時の剥離工程において高温で剥離しなければ板割れする問題がある。

#### 【0005】

また、耐熱性や外観を改良する目的で、アルキルメタクリレート単量体および（メタ）アクリレート系架橋剤を配合して部分重合してなるアルキルメタクリレート系シラップと、架橋剤とからなる組成物を鑄込重合する方法が提案されている（例えば、特許文献3参照）。しかし、この方法では、架橋剤を配合してシラップを調製する際にゲル化が起こり易いという問題がある。

#### 【0006】

また、外観を改良する目的で、架橋剤とアルキルメタクリレート系重合体の比率を一定領域に規定する方法が提案されている（例えば、特許文献4参照）。しかし、ここでは、多官能性単量体が20質量%を超える実施の記載は無く、また、この方法では、通常は十分な耐熱性を得ることができない。また、耐熱性が高く且つ外観に優れた樹脂板を得るためには組成上の制約があり、それが工業化する際の支障となる。

#### 【0007】

さらに、メチルメタクリレートを主体とする単量体とアリル（メタ）アクリレートとを、10時間半減期温度が75℃を境に高いものと低いものでその差が5℃以上隔たっている少なくとも2種のラジカル重合開始剤を用いて注型重合するアクリル系樹脂板の製造方法が提案されている（例えば、特許文献5参照）。しかし、この方法では、アリル基の重合性が悪く、十分な耐熱性が得られないという問題がある。

#### 【0008】

## 【特許文献1】

特公平4-75241号公報

## 【特許文献2】

特開2002-265538号公報

## 【特許文献3】

特開昭63-30510号公報

## 【特許文献4】

特開昭61-225207号公報

## 【特許文献5】

特開平9-25305号公報

## 【0009】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、製造時の剥離工程における板割れ防止性が良好で、且つ耐熱性に優れたアクリル系樹脂板の製造方法を提供することにある。

## 【0010】

## 【課題を解決するための手段】

本発明は、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体30～65質量%と、2個以上の（メタ）アクリロイル基を有する多官能（メタ）アクリレート35～70質量%とからなる混合物100質量部当たり、10時間半減期温度が80℃以上の重合開始剤0.001～1質量部と、シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体からなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物0.015～0.2質量部とを含有させて重合性混合物とし、該重合性混合物を重合硬化する工程を有するアクリル系樹脂板の製造方法である。

## 【0011】

さらに本発明は、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体70～99質量%と、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体単位からなる（共）重合体1～30質量%とからなるシラップ30～65



質量部、および、2個以上の(メタ)アクリロイル基を有する多官能(メタ)アクリレート35～70質量部からなる混合物100質量部当たり、10時間半減期温度が80℃以上の重合開始剤0.001～1質量部と、シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体からなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物0.015～0.2質量部とを含有させて重合性混合物とし、該重合性混合物を重合硬化する工程を有するアクリル系樹脂板の製造方法である。

#### 【0012】

##### 【発明の実施の形態】

まず、モノエチレン性不飽和単量体と多官能(メタ)アクリレートからなる混合物を用いる場合について説明する。

#### 【0013】

この場合の混合物は、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体30～65質量%と、2個以上の(メタ)アクリロイル基を有する多官能(メタ)アクリレート35～70質量%とからなるものである。

#### 【0014】

この炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体の含有量が30質量%以上であると外観が向上し、65質量%以下であると耐熱性が向上する傾向がある。特に、55質量%以下であることが好ましい。

#### 【0015】

炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルとしては、例えば、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸n-プロピル、メタクリル酸イソプロピル、メタクリル酸n-ブチル、メタクリル酸i-ブチル、メタクリル酸t-ブチル等が挙げられる。これらは併用することもできる。これらのなかでも、メタクリル酸メチルが特に好ましい。

#### 【0016】

炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノ

エチレン性不飽和単量体 100 質量%中の炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルの含有量は、50 質量%以上であることが好ましい。

#### 【0017】

炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステル以外のモノエチレン性不飽和単量体としては、例えば、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、アクリロニトリル、アクリル酸、メタクリル酸、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸 *n*-ブチル、メタクリル酸 2-エチルヘキシル、メタクリル酸ラウリル、メタクリル酸トリデシル、メタクリル酸ステアリル、メタクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸ベンジル、メタクリル酸イソボルニル、メタクリル酸グリシジル、メタクリル酸テトラヒドロフルフリル、メタクリル酸 2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸ヒドロキシプロピル、メタクリル酸メトキシエチル、メタクリル酸エトキシエチル等が挙げられる。これらは、併用することもできる。

#### 【0018】

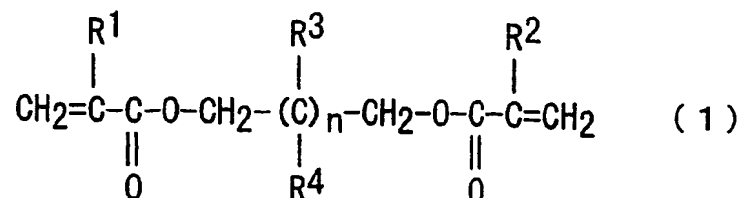
炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステル以外のモノエチレン性不飽和単量体の含有量は、炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体 100 質量%中、50 質量%以下であることが好ましい。50 質量%以下であると、透明性が向上する傾向があり、また耐熱性がより向上することがある。

#### 【0019】

混合物を構成する 2 個以上の (メタ) アクリロイル基を有する多官能 (メタ) アクリレートとは、2 個以上のアクリロイル基を有する多官能アクリレート、または 2 個以上のメタクリロイル基を有する多官能メタクリレートである。これらを併用することもできる。これら多官能 (メタ) アクリレートは、下記一般式 (1)

#### 【0020】

## 【化2】



## 【0021】

(式中、 $\text{R}^1$ および $\text{R}^2$ はHまたは $\text{CH}_3$ を示し、 $\text{R}^3$ および $\text{R}^4$ はHまたは炭素数3以下の炭化水素基を示し、 $n$ は0～4の整数を示す。)

で示される化合物であることが好ましい。

## 【0022】

一般式(1)で示される化合物としては、例えば、エチレングリコールジメタクリレート、エチレングリコールジアクリレート、1,3-プロパンジオールジメタクリレート、1,3-プロパンジオールジアクリレート、1,4-ブチレングリコールジメタクリレート、1,6-ヘキサジオールジメタクリレート、2-メチル-1,3-プロパンジオールジメタクリレート、ネオペンチルグリコールジメタクリレート、ネオペンチルグリコールジアクリレート、2,2'-ジメチル-1,4-ブタンジオールジメタクリレート等が挙げられる。透明性向上の点から、最も好ましいのはネオペンチルグリコールジメタクリレートである。これらは併用することもできる。一般式(1)において、 $n$ が1以上の場合は外観が良好になり、 $n$ が4以下の場合は耐熱性が向上する傾向がある。

## 【0023】

2個以上の(メタ)アクリロイル基を有する多官能(メタ)アクリレートの含有量は、混合物中35～70質量%である。多官能(メタ)アクリレートが35質量%以上の場合は耐熱性が向上し、70質量%以下の場合は外観が良好になる傾向がある。特に、45質量%以上であることが好ましい。

## 【0024】

次に、モノエチレン性不飽和単量体と(共)重合体とからなるシラップ、および、多官能(メタ)アクリレートからなる混合物を用いる場合について説明する

## 【0025】

この場合の混合物は、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体70～99質量%と、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体単位を含む（共）重合体1～30質量%とからなるシラップ30～65質量部、および、2個以上の（メタ）アクリロイル基を有する多官能（メタ）アクリレート35～70質量部からなるものである。特に、混合物100質量部中、シラップ含有量は55質量部以下であることが好ましく、多官能（メタ）アクリレート含有量は45質量部以上であることが好ましい。

## 【0026】

シラップを構成する炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体の含有量は、シラップ中、70～99質量%である。この単量体が70質量%以上の場合は耐熱性が向上し、99質量%以下の場合は外観が向上する傾向がある。

## 【0027】

シラップを構成する炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルの具体例、それ以外のモノエチレン性不飽和単量体の具体例、および、両者の好適な組成比としては、前述と同じものが挙げられる。

## 【0028】

シラップを構成する（共）重合体は、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体単位からなるものである。すなわち、炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステル単独重合体あるいは炭素数1～4のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルおよびこれと共重合し得るモノエチレン性不飽和単量体との共重合体である。以下、この重合体あるいは共重合体を、適宜、「（共）重合体」という）。

## 【0029】

この（共）重合体の含有量は、シラップ中、1～30質量%である。（共）重

合体の含有量が 1 質量% 以上の場合は外観が向上し、30 質量% 以下の場合は耐熱性が向上する傾向がある。

#### 【0030】

(共) 重合体を構成する炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルの具体例、それ以外のモノエチレン性不飽和単量体の具体例、および、両者の好適な組成比としては、前述と同じものが挙げられる。

#### 【0031】

また、シラップと共に混合物を構成する 2 個以上の (メタ) アクリロイル基を有する多官能 (メタ) アクリレートとしても、前述と同じものが挙げられる。

#### 【0032】

本発明においては、以上説明した 2 種の混合物のうちの何れか一つを用い、その混合物 100 質量部当たり、10 時間半減期温度が 80℃ 以上の重合開始剤 0.001～1 質量部と、シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体からなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物 0.015～0.2 質量部とを添加して、重合性混合物を調製する。

#### 【0033】

10 時間半減期温度が 80℃ 以上の重合開始剤としては、例えば、1,1'-アゾビス (シクロヘキサン-1-カルボニトリル) (10 時間半減期温度 88℃)、2,2'-アゾビス (2,4,4-トリメチルペンテン) (10 時間半減期温度 110℃)、2-シアノー-2-プロピラゾホルムアミド (10 時間半減期温度 104℃)、ジクミルパーオキサイド (10 時間半減期温度 117℃)、t-ブチルクミルパーオキサイド (10 時間半減期温度 121℃)、ジ-tert-ブチルパーオキサイド (10 時間半減期温度 126℃)、t-ブチルパーオキシ-3,3,5-トリメチルヘキサノエート (10 時間半減期温度 100℃)、t-ブチルパーオキシラウレート (10 時間半減期温度 95℃)、t-ブチルパーオキシアセテート (10 時間半減期温度 103℃)、ジ-tert-ブチルパーオキシヘキサヒドロテレフタレート (10 時間半減期温度 83℃)、ジ-tert-ブチルパーオキシアゼレート (10 時間半減期温度 99℃)、t-ブチルパーオキシアリルカーボネート (10 時間半減期温度 94℃)、t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート

ト（10時間半減期温度97℃）、1,1-ジ-*t*-ブチルパーオキシシクロヘキサン（10時間半減期温度97℃）、1,1-ジ-*t*-ブチルパーオキシ-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン（10時間半減期温度95℃）、1,1-ジ-*t*-ヘキシルパーオキシ-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン（10時間半減期温度87℃）等が挙げられる。これらは併用することもできる。10時間半減期温度の上限は、130℃であることが好ましい。

#### 【0034】

10時間半減期温度が80℃以上の重合開始剤の添加量は、混合物100質量部当たり、0.001～1質量部である。この添加量が0.001質量部以上であると、シクロペンタジエン、テルペノイド系化合物およびそれら誘導体が添加されていても耐熱性が向上する傾向がある。また、1質量部以下であると残存開始剤が減少し熱安定性が良好になる傾向がある。さらに、この添加量は0.005～0.5質量部であることが好ましい。

#### 【0035】

また、このような開始剤と共に、10時間半減期温度が80℃未満の重合開始剤を併用することもできる。10時間半減期温度が80℃未満の重合開始剤としては、例えば、*t*-ブチルパーオキシイソブチレート（10時間半減期温度77℃）、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート（10時間半減期温度72℃）、*t*-ブチルパーオキシピバレート（10時間半減期温度55℃）、*t*-ヘキシルパーオキシピバレート（10時間半減期温度53℃）、*t*-ブチルパーオキシネオデカノエート（10時間半減期温度47℃）、*t*-ブチルパーオキシネオデカノエート（10時間半減期温度47℃）、2,2'-アゾビスイソブチロニトリル（10時間半減期温度65℃）、2,2'-アゾビス（2,4-ジメチルバレロニトリル）（10時間半減期温度51℃）、及び2,2'-アゾビス（2,4-ジメチル-4-メトキシバレロニトリル）（10時間半減期温度30℃）等が挙げられる。これらは併用することもできる。

#### 【0036】

シクロペンタジエンおよびその誘導体並びにテルペノイド系化合物およびその誘導体からなる群より選ばれる少なくとも一種の化合物は、重合調節剤として機

能する成分である。以下、これを「化合物 (a)」という。この化合物 (a) としては、例えば、1,4-シクロヘキサジエン、1-メチル-1,4-シクロヘキサジエン、 $\alpha$ -テルピネン、 $\beta$ -テルピネン、 $\gamma$ -テルピネン、テルピノレン、リモネン、ミルセン、 $\alpha$ -ピネン、 $\beta$ -ピネン、テルピノール等が挙げられる。特に、テルピノレンが好ましい。

#### 【0037】

化合物 (a) の添加量は、混合物 100 質量部当たり、0.015～0.2 質量部である。この添加量が 0.015 質量部以上であると製造時の剥離工程において板割れしにくくなり、0.2 質量部以下であると残存モノマーが減少し熱安定性が良好になる傾向がある。ここで製造時の剥離工程とは、重合硬化終了後からアクリル系樹脂板を鋳型から剥離するまでの工程である。さらに、この添加量は 0.02～0.15 質量部であることが好ましい。

#### 【0038】

以上説明した重合性混合物を重合硬化することにより、アクリル系樹脂板を得ることができる。以下に、炭素数 1～4 のアルキル基を有するメタクリル酸アルキルエステルとしてメタクリル酸メチルを使用する鋳込重合の方法を例示するが、本発明はこれに限定されない。まず、メタクリル酸メチル、多官能 (メタ) アクリレート、必要に応じてメタクリル酸メチル単位を含有する (共) 重合体、更に、必要に応じて共重合可能な他のモノエチレン性不飽和単量体を、吸引瓶中に仕込み、攪拌して混合物とする。その混合物に重合開始剤、重合調節剤 [化合物 (a)] を添加し、真空脱気を行って、重合性混合物とする。この重合性混合物を、一対の強化ガラスシートにガスケットを挟んで構成された鋳型に注入し、加熱炉に入れて 40～70℃で 2～5 時間、100～150℃で 1～6 時間重合硬化を行い、鋳型から剥離して、アクリル系樹脂板を得ることができる。

#### 【0039】

この強化ガラスシートに代えて、例えば、鏡面 SUS シート、表面に細かな凹凸を付けたガラスシート、対向して走行する鏡面 SUS 製のエンドレスベルトを鋳型として使用することもできる。また、重合温度、時間は、所望に応じて適宜選択すればよい。

## 【0040】

アクリル系樹脂板の板厚は、0.5～5mmであることが好ましい。板厚が0.5mm以上であると、塊状重合により製板する場合、アクリル系樹脂板を鋳型から剥離させる時に割れが発生し難くなる傾向がある。また、5mm以下であると、重合時に板割れし難くなる傾向がある。

## 【0041】

重合性混合物には、必要に応じて、さらに着色剤、離型剤、酸化防止剤、安定剤、帯電防止剤、抗菌剤、難燃剤、耐衝撃改質剤、光安定剤、紫外線吸収剤、光拡散剤、重合禁止剤、連鎖移動剤等を添加することができる。

## 【0042】

重合性混合物の重合硬化方法は、公知の方法により可能であるが、特に、鋳型に重合性混合物を注入し、重合硬化して、鋳型から剥離する、いわゆる鋳込重合法が好ましい。

## 【0043】

本発明により得られるアクリル系樹脂板は、アクリル系樹脂の優れた光学特性を維持したまま、耐熱性、外観、製造時の剥離工程における板割れ防止性が大きく改良されたものである。このようなアクリル系樹脂板は、例えば、白熱灯カバー、ハロゲンランプカバー等の発熱光源の周辺材料、衣類乾燥機、電子レンジ、オーブン等の加熱家電機器の部品、眼鏡レンズ、サングラスレンズ、カメラ用レンズ、ビデオカメラ用レンズ、ゴーグル用レンズ、コンタクトレンズ等の光学レンズ、メーターカバー等の車載部品、車載用のオーディオ機器部品、車載用のディスプレイ装置部品、車載用ナビゲーションシステム部品等の車載材料に、さらには、プラズマディスプレイ装置、液晶ディスプレイ装置、プロジェクション式ディスプレイ装置等の各種ディスプレイ装置の前面板、液晶ディスプレイの光導光板等の各種ディスプレイ部材に用いることができる。

## 【0044】

また、アクリル系樹脂板上にITO等の透明導電膜を形成し、透明導電膜材料としての利用も可能である。例えば、コンデンサ、抵抗体等の電気部品回路材料、電子写真や静電記録等の複写用材料、液晶ディスプレイ用、エレクトロクロミ



ックディスプレイ用、エレクトロルミネッセンスディスプレイ用、タッチパネル用等の信号入力用透明電極、太陽電池、光増幅器等の光電変換素子に、その他、帯電防止用部材、電磁波遮蔽用部材、面発熱体、センサー等の各種用途に用いることができる。

#### 【0045】

##### 【実施例】

以下、実施例により本発明を更に具体的に説明する。なお、以下の記載において、「部」は質量基準であり、「%」はヘーズの測定値以外は質量基準である。また、表中の各評価は次の方法に従い実施した。

#### 【0046】

##### (1) 荷重たわみ温度：

耐熱性を評価する為に、JIS-K7207に示される測定法に準拠して、荷重たわみ温度を測定した。

#### 【0047】

##### (2) ヘーズ：

樹脂板の光学特性を評価する為に、JIS-K7136に示される測定法に準拠して、ヘーズを測定した。

#### 【0048】

##### (3) 板割れ防止性：

板割れ防止性を評価する為に、アクリル系樹脂板を10枚作製し、重合硬化が終了した後、鋳型を40℃以下に冷却し、アクリル系樹脂板を鋳型から剥離するまでに板割れしなかったサンプル数を  $n/10$  で示した。

#### 【0049】

##### (4) 外観：

外観を評価する為に、目視により、白化、ヒケ等の欠陥の無いサンプル数を  $n/10$  で示した。

#### 【0050】

##### [実施例1]

メタクリル酸メチル重合体7.5%およびメタクリル酸メチル92.5%からな

る混合物 50 部と、ネオペンチルグリコールジメタクリレート 50 部との混合物 100 部当たり、重合開始剤として 2,2'-アゾビス(2,4-ジメチル-4-メトキシバレロニトリル)(10 時間半減期温度 30℃) 0.03 部、t-ヘキシルパーオキシピバレート(10 時間半減期温度 53℃) 0.01 部、t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート(10 時間半減期温度 97℃) 0.01 部、テルピノレン 0.03 部を混合し、吸引瓶中に仕込んで攪拌し、真空脱気を行い、重合性混合物を得た。

#### 【0051】

次に、この重合性混合物を、間隔 1.7 mm の一対の強化ガラスシートにガasket を挟んで構成された鋳型に注入し、気泡を除き、加熱炉に入れて 55℃で 1 時間、50℃で 1 時間、続いて 130℃で 2 時間重合を行った。その後、鋳型を 40℃以下に冷却し、剥離して、厚みが 1 mm のアクリル系樹脂板を得た。

#### 【0052】

この樹脂板は、重合硬化後冷却中に板割れすることなく、剥離して取り出す際にも板割れは起きなかった。また、この樹脂板は白化やヒケのない良好な外観を有していた。この樹脂板のヘーズを測定したところ 0.2% であり、良好な透明性を示した。また、荷重たわみ温度は 189℃であった。原料の組成の一部と評価結果を表 1 に示す。

#### 【0053】

[実施例 2～7、比較例 1～5]

表 1 および表 2 に示す原料組成を採用したこと以外は、実施例 1 と同様にして樹脂板を製造した。評価結果を表 1 および表 2 に示す。

#### 【0054】

【表 1】

	メタクリル 酸メチル	メタクリル酸 メチル重合体		多官能 (メタ) アクリレート		重合開始剤			重合調節剤		荷重たわ み温度 (°C)	ヘーズ (%)	板割れ 防止性	外観
		(部)	数平均分子量	(部)	種類	(部)	種類	(部)	種類	(部)				
1 実施例	46.25	450000	3.75	ネオペンチルグリコール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.03	189	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
2	46.25	450000	3.75	ネオペンチルグリコール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.06	190	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
3	46.25	450000	3.75	ネオペンチルグリコール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.1	190	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
4	46.25	450000	3.75	ネオペンチルグリコール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.02	187	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
5	37	450000	3	ネオペンチルグリコール ジメタクリレート	60	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.03	>200	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
6	50.87	450000	4.13	ネオペンチルグリコール ジメタクリレート	45	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.03	167	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.02							
7	50	—	0	ネオペンチルグリコール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.03	190	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							

【0055】

【表 2】

	メタクリル 酸メチル (部)	メタクリル メチル重合体		多官能 (メタ) アクリレート		重合開始剤			重合調節剤		荷重たわ み温度 (°C)	ヘーズ (%)	板割れ 防止性	外観
		数平均分子量	(部)	種類	(部)	種類	(部)	種類	(部)					
1 比較例	46.25	450000	3.75	ネオペンチルグリ コール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0	184	0.2	1/10	7/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
2	46.25	450000	3.75	ネオペンチルグリ コール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.005	185	0.2	3/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
3	50.87	450000	4.13	ネオペンチルグリ コール ジメタクリレート	45	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.03	154	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
4	64.75	450000	5.25	ネオペンチルグリ コール ジメタクリレート	30	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.03	141	0.2	10/10	10/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							
5	50	—	0	ネオペンチルグリ コール ジメタクリレート	50	ADMVN	0.03	テルピ ノレン	0.005	184	0.2	0/10	0/10	
						HPP	0.01							
						BPIC	0.01							

【0056】

各表中の重合開始剤の略号は、以下の開始剤を示す。

「ADMVN」：2,2'-アゾビス（2,4-ジメチル-4-メトキシバレロニトリル）（10時間半減温度30℃）

「HPP」：t-ヘキシルパーオキシピバレート（10時間半減温度53℃）

「BPIC」：t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート（10時間半減温度97℃）。

#### 【0057】

表1に示す通り、実施例1～7は良好な外観、透明性、耐熱性、板割れ防止性を示した。一方、表2に示す通り、比較例1～5では耐熱性が低下したり、外観不良が生じたり、剥離工程で板割れが生じたりする等の問題が生じた。

#### 【0058】

##### 【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、アクリル系樹脂板の製造方法において、アクリル系樹脂の優れた光学特性を維持したまま、耐熱性、外観、製造時の剥離工程における板割れ防止性を大きく改良することができる。

#### 【0059】

本発明により得られるアクリル系樹脂板は、特に、発熱光源の周辺材料、加熱家電機器の部品、光学レンズ用、車載部品、車載材料に、さらには、前面板、光導光板などの各種ディスプレイの部材に用いることができる。また、アクリル系樹脂板上にITOなどの透明導電膜を形成し、透明導電膜材料としての利用が可能で、電気部品回路材料、複写用材料、信号入力用透明電極、光電変換素子の他、各種用途に用いることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 板割れ防止性と耐熱性に優れたアクリル系樹脂板の製造方法を提供する。

【解決手段】 C1-4アルキル基含有メタクリル酸アルキルエステルを含むモノエチレン性不飽和単量体30-65質量%と、多官能(メタ)アクリレート35-70質量%とからなる混合物(A)100質量部当たり、または、該不飽和単量体70-99質量%と該不飽和単量体単位からなる(共)重合体1-30質量%とからなるシラップ30-65質量部および多官能(メタ)アクリレート35-70質量部からなる混合物(B)100質量部当たり、10時間半減期温度が80℃以上の重合開始剤0.001-1質量部と、シクロペンタジエン、テルペノイド系化合物およびそれらの誘導体のうちの一種以上の化合物0.015-0.2質量部とを含有させて重合性混合物とし、該重合性混合物を重合硬化するアクリル系樹脂板の製造方法。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 2 - 3 2 6 8 0 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 6 0 3 5 ]

1. 変更年月日

1 9 9 8 年 4 月 2 3 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都港区港南一丁目 6 番 4 1 号

氏 名

三菱レイヨン株式会社